

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2003年 3月31日
Date of Application:

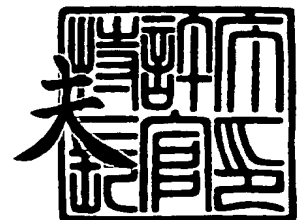
出願番号 特願2003-095965
Application Number:
[ST. 10/C]: [JP2003-095965]

出願人 セイコーエプソン株式会社
Applicant(s):

2003年10月31日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井 康夫



出証番号 出証特2003-3090865

【書類名】 特許願

【整理番号】 J0097073

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/00

【発明者】

 【住所又は居所】 長野県諏訪市大和 3 丁目 3 番 5 号 セイコーエプソン株式会社内

 【氏名】 森井 克行

【発明者】

 【住所又は居所】 長野県諏訪市大和 3 丁目 3 番 5 号 セイコーエプソン株式会社内

 【氏名】 小松 寛和

【特許出願人】

 【識別番号】 000002369

 【氏名又は名称】 セイコーエプソン株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100095728

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 上柳 雅誉

 【連絡先】 0 2 6 6 - 5 2 - 3 1 3 9

【選任した代理人】

 【識別番号】 100107076

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 藤網 英吉

【選任した代理人】

 【識別番号】 100107261

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 須澤 修

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 013044

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0109826

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池、その製造方法、電子機器および自動車

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

第 1 の集電層、第 1 の反応層、電解質膜、第 2 の反応層、第 2 の集電層が形成されてなる燃料電池の製造方法であって、

前記第 1 の集電層の上に、反応層形成用材料を所定間隔をおいて塗布することを繰り返すことにより、第 1 の反応層を形成する工程を有することを特徴とする燃料電池の製造方法。

【請求項 2】

第 1 の基板に、第 1 の反応ガスを供給するための第 1 のガス流路を形成する第 1 のガス流路形成工程と、前記第 1 のガス流路を介して供給された第 1 の反応ガスが反応することにより生じた電子を集める第 1 の集電層を形成する第 1 の集電層形成工程と、前記第 1 のガス流路を介して供給された第 1 の反応ガスを触媒により反応させる第 1 の反応層を形成する第 1 の反応層形成工程と、電解質膜を形成する電解質膜形成工程と、第 2 の基板に、第 2 の反応ガスを供給するための第 2 のガス流路を形成する第 2 のガス流路形成工程と、前記第 2 のガス流路を介して供給された第 2 の反応ガスが反応するための電子を集める第 2 の集電層を形成する第 2 の集電層形成工程と、前記第 2 のガス流路を介して供給された第 2 の反応ガスを触媒により反応させる第 2 の反応層を形成する第 2 の反応層形成工程とを有する燃料電池の製造方法であって、

前記第 1 の反応層形成工程及び第 2 の反応層形成工程の少なくとも一方は、第 1 の集電層上又は第 2 の集電層上に、反応層形成用材料を所定間隔をおいて塗布することを繰り返すことにより、第 1 の反応層又は第 2 の反応層を形成するものであることを特徴とする燃料電池の製造方法。

【請求項 3】

吐出装置を用いて前記反応層形成用材料を塗布することを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 4】

前記反応層形成用材料を塗布した後、得られた塗膜を、減圧下、100℃以下の温度条件で不要分を除去することにより、第1の反応層を形成することを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の燃料電池の製造方法。

【請求項5】

前記第1の集電層上の第1の反応層形成部位全体に、反応層形成用材料の所定量を所定間隔をおいて塗布し、塗布された反応層形成用材料の液滴から不要物を除去することを1単位操作とし、該単位操作を繰り返すことにより第1の反応層を形成することを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載の燃料電池の製造方法。

【請求項6】

前記吐出装置として吐出ノズルを複数個有する吐出装置を用い、前記1単位操作毎に異なる吐出ノズルから反応層形成用材料を吐出させて塗布することを特徴とする請求項5に記載の燃料電池の製造方法。

【請求項7】

請求項1～6のいずれかに記載の製造方法により製造された燃料電池を電力供給源として備えることを特徴とする電子機器。

【請求項8】

請求項1～6のいずれかに記載の製造方法により製造された燃料電池を電力供給源として備えることを特徴とする自動車。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、外部から種類の異なる反応ガスをそれぞれの電極に供給し、供給された反応ガスに基づく反応により発電する燃料電池、その製造方法、並びに該燃料電池を電力供給源として備える電子機器及び自動車に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来、電解質膜とこの電解質膜の一面に配置された電極（アノード）、及び電解質膜の他面に配置された電極（カソード）等から構成される燃料電池が存在す

る。例えば、電解質膜が固体高分子電解質膜である固体高分子電解質型燃料電池では、アノード側では水素を水素イオンと電子にする反応が行われ、電子がカソード側に流れ、水素イオンはカソード側に電解質膜中を移動し、カソード側では、酸素ガス、水素イオン及び電子から水を生成する反応が行われる。

【0 0 0 3】

このような固体電解質型燃料電池においては、各電極は、通常、反応ガスの反応触媒である金属微粒子からなる反応層と、反応層の基板側に炭素微粒子からなるガス拡散層と、及びガス拡散層の基板側に導電性物質からなる集電層とから形成されてなる。一方の基板において、ガス拡散層を構成する炭素微粒子の隙間を通過して均一に拡散された水素ガスは、反応層において反応して電子と水素イオンとなる。発生した電子は集電層に集められ、他方の基板の集電層に電子が流れる。水素イオンは高分子電解質膜を介して第2の基板の反応層へ移動し、集電層から流れてきた電子及び酸素ガスとから水を生成する反応が行われる。

【0 0 0 4】

このような燃料電池において、反応層を形成する方法としては、例えば、(a) 触媒担持カーボンを高分子電解質溶液と有機溶媒に混合して調製した電極触媒層形成用ペーストを転写基材（ポリテトラフルオロエチレン製シート）に塗布、乾燥し、それを電解質膜に熱圧着し、次いで、転写基材を剥がすことにより電解質膜に触媒層（反応層）を転写する方法（特許文献1）、(b) 電極として用いるカーボン層の上に固体触媒を担持したカーボン粒子の電解質溶液をスプレーを用いて塗布し、その後溶媒を揮発させることにより作製する方法が知られている（特許文献2）。

【0 0 0 5】

しかしながら、これらの方法は工程数が多く煩雑であり、その上、均一に触媒を塗布することや、所定の位置に所定量の触媒を正確に塗布することが困難であるため、得られる燃料電池の特性（出力密度）が低下したり、白金等の高価な触媒の使用量の増加により製造コストが高くなるという問題があった。

【0 0 0 6】

【特許文献1】

特開平 8-88008 号公報

【特許文献 2】

特開 2002-298860 号公報

【0007】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、このような従来技術の問題を解決すべくなされたものであって、反応層で生じた電子を効率よく集める集電層及び反応効率のよい反応層を有し、出力密度が高く、特性のよい燃料電池を効率よく製造する燃料電池の製造方法、並びにこの燃料電池を電力供給源として備える電子機器及び自動車を提供することを課題とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討した結果、インクジェット式吐出装置（以下、吐出装置という）を使用して、反応槽形成用材料の所定量を所定間隔をおいて塗布することを繰り返すことで、均一な所望量の触媒金属を有する反応層を効率よく形成できることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0009】

かくして本発明の第 1 によれば、第 1 の集電層、第 1 の反応層、電解質膜、第 2 の反応層、第 2 の集電層が形成されてなる燃料電池の製造方法であって、前記第 1 の集電層の上に、反応層形成用材料の所定量を所定間隔をおいて塗布することを繰り返すことにより、第 1 の反応層を形成する工程を有することを特徴とする燃料電池の製造方法が提供される。

【0010】

本発明の製造方法は、第 1 の基板に、第 1 の反応ガスを供給するための第 1 のガス流路を形成する第 1 のガス流路形成工程と、前記第 1 のガス流路を介して供給された第 1 の反応ガスが反応することにより生じた電子を集める第 1 の集電層を形成する第 1 の集電層形成工程と、前記第 1 のガス流路を介して供給された第 1 の反応ガスを触媒により反応させる第 1 の反応層を形成する第 1 の反応層形成工程と、電解質膜を形成する電解質膜形成工程と、第 2 の基板に、第 2 の反応ガ

スを供給するための第 2 のガス流路を形成する第 2 のガス流路形成工程と、前記第 2 のガス流路を介して供給された第 2 の反応ガスが反応するための電子を集める第 2 の集電層を形成する第 2 の集電層形成工程と、前記第 2 のガス流路を介して供給された第 2 の反応ガスを触媒により反応させる第 2 の反応層を形成する第 2 の反応層形成工程とを有する燃料電池の製造方法であって、前記第 1 の反応層形成工程及び第 2 の反応層形成工程の少なくとも一方は、第 1 の集電層上又は第 2 の集電層上に、反応層形成用材料の所定量を所定間隔をおいて塗布することを繰り返すことにより、第 1 の反応層又は第 2 の反応層を形成するものであるのが好ましい。

【0 0 1 1】

本発明の製造方法においては、吐出装置を用いて前記反応層形成用材料を塗布するのが好ましい。

本発明の製造方法においては、前記反応層形成用材料を塗布して得られた塗膜を、減圧下、1 0 0 ℃以下の温度条件で不要分を除去することにより、第 1 の反応層を形成するのが好ましい。

また、本発明の製造方法においては、前記第 1 の集電層上の第 1 の反応層形成部位全体に、反応層形成用材料の所定量を所定間隔をおいて塗布し、塗布された反応層形成用材料の液滴から不要物を除去することを 1 単位操作とし、該単位操作を繰り返すことにより第 1 の反応層を形成するのが好ましく、前記吐出装置として吐出ノズルを複数個有する吐出装置を用い、前記 1 単位操作毎に異なる吐出ノズルから反応層形成用材料を吐出させて塗布するのがより好ましい。

【0 0 1 2】

本発明の第 2 によれば、本発明の製造方法により製造された燃料電池を電力供給源として備えることを特徴とする電子機器が提供される。

本発明の第 3 によれば、本発明の製造方法により製造された燃料電池を電力供給源として備えることを特徴とする自動車が提供される。

【0 0 1 3】

本発明の燃料電池の製造方法によれば、均一な所望量の触媒金属を有する反応層を効率よく形成できる。また、従来の反応層形成用材料をベタ塗りして反応層

層を形成した場合に比して、触媒金属の使用量が少なくなるので、低コストな燃料電池となっている。

【0014】

本発明の燃料電池の製造方法において、吐出装置を用いて前記反応層形成用材料を塗布する場合には、所定量の反応層形成用材料を所定位置に正確に塗布することができるので、均一な所望量の触媒金属を有する反応層をより効率よく形成することができる。

【0015】

本発明の製造方法において、前記反応層形成用材料を塗布して得られた塗膜を、減圧下、100℃以下の温度条件で不要分を除去することにより、第1の反応層を形成する場合には、吐出装置により形成した反応層形成用材料の塗膜の分散状態を破壊することなく、均一な所望量の触媒金属を有する反応層をより効率よく形成することができる。

【0016】

本発明の製造方法において、前記第1の集電層上の第1の反応層形成部位全体に、反応層形成用材料の所定量を所定間隔をおいて塗布し、塗布された反応層形成用材料の液滴から不要物を除去することを1単位操作とし、この操作を繰り返すことにより第1の反応層を形成する場合には、吐出装置により形成した反応層形成用材料の塗膜の分散状態を破壊することなく、均一な所望量の触媒金属を有する反応層をより効率よく形成することができる。

【0017】

また本発明の製造方法において、前記吐出装置として吐出ノズルを複数個有する吐出装置を用い、前記1単位操作毎に異なる吐出ノズルから反応層形成用材料を塗布する場合には、単位面積あたりの反応層形成用材料の塗布量の偏りがなくなるので、均一に触媒金属が分散された反応層をより効率よく形成することができる。

【0018】

本発明の電子機器は、本発明の製造方法により製造された燃料電池を電力供給源として備えることを特徴とする。本発明の電子機器によれば、地球環境に適切

に配慮したクリーンエネルギーを電力供給源として備えることができる。

また、本発明の自動車は、本発明の製造方法により製造された燃料電池を電力供給源として備えることを特徴とする。本発明の自動車によれば、地球環境に適切に配慮したクリーンエネルギーを電力供給源として備えることができる。

【0019】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の燃料電池の製造方法、並びに本発明の製造方法により製造された燃料電池を備える電子機器及び自動車について詳細に説明する。

本発明の燃料電池の製造方法は、第1の集電層、第1の反応層、電解質膜、第2の反応層、第2の集電層が形成されてなる燃料電池の製造方法であって、前記第1の集電層の上に、反応層形成用材料の所定量を所定間隔をおいて塗布することを繰り返すことにより、第1の反応層を形成する工程を有することを特徴とする。

【0020】

本発明の燃料電池の製造方法は、図1に示す燃料電池の製造装置（燃料電池製造ライン）を使用して実施することができる。図1に示す燃料電池製造ラインにおいては、各工程においてそれぞれ用いられる吐出装置20a～20m、吐出装置20a～20kを接続するベルトコンベアBC1、吐出装置20l、20mを接続するベルトコンベアBC2、ベルトコンベアBC1、BC2を駆動させる駆動装置58、燃料電池の組み立てを行なう組立装置60及び燃料電池製造ライン全体の制御を行なう制御装置56により構成されている。

【0021】

吐出装置20a～20kは、ベルトコンベアBC1に沿って所定の間隔で一列に配置されており、吐出装置20l、20mはベルトコンベアBC2に沿って所定の間隔で一列に配置されている。また、制御装置56は、吐出装置20a～20k、駆動装置58及び組立装置60と接続されている。

【0022】

この燃料電池製造ラインにおいては、駆動装置58により駆動されたベルトコンベアBC1を駆動させ、燃料電池の基板（以下、単に「基板」という。）を各

吐出装置 20a～20k に搬送して各吐出装置 20a～20k における処理が行なわれる。同様に、制御装置 56 からの制御信号に基づいてベルトコンベア BC2 を駆動させ、基板を吐出装置 291、20m に搬送して、吐出装置 201、20m における処理が行なわれる。また、組立装置 60 においては、制御装置 56 からの制御信号に基づいてベルトコンベア BC1 及び BC2 によって搬送されてきた基板を用いて燃料電池が組み立て作業が行なわれる。

【0023】

吐出装置 20a～20m としては、インクジェット方式の吐出装置であれば特に制約されない。例えば、加熱発泡により気泡を発生し、液滴の吐出を行なうサーマル方式の吐出装置、ピエゾ素子を利用する圧縮により、液滴の吐出を行なうピエゾ方式の吐出装置等が挙げられる。

【0024】

本実施形態では、吐出装置 20a として、図 2 に示すものを用いる。吐出装置 20a は、吐出物 34 を収容するタンク 30 と、タンク 30 と吐出物搬送管 32 を介して接続されたインクジェットヘッド 22、被吐出物を搭載、搬送するテーブル 28、インクジェットヘッド 22 内に滞留する余剰の吐出物 34 を吸引して、インクジェットヘッド 22 内から過剰の吐出物を除去する吸引キャップ 40、及び吸引キャップ 40 で吸引された余剰の吐出物を収容する廃液タンク 48 から構成されている。

【0025】

タンク 30 は、レジスト溶液等の吐出物 34 を収容するものであり、タンク 30 内に収容されている吐出物の液面 34a の高さを制御するための液面制御センサ 36 を備える。液面制御センサ 36 は、インクジェットヘッド 22 が備えるノズル形成面 26 の先端部 26a と、タンク 30 内の液面 34a との高さの差 h （以下、水頭値という）を所定の範囲内に保つ制御を行う。例えば、この水頭値が $25\text{ m} \pm 0.5\text{ mm}$ 内となるように液面 34a の高さを制御することで、タンク 30 内の吐出物 34 が所定の範囲内の圧力でインクジェットヘッド 22 に送ることができる。所定の範囲内の圧力で吐出物 34 を送ることで、インクジェットヘッド 22 から必要量の吐出物 34 を安定して吐出することができる。

【0026】

吐出物搬送管 32 は、吐出物搬送管 32 の流路内の帯電を防止するための吐出物流路部アース継手 32a とヘッド部気泡排気弁 32b とを備える。ヘッド部気泡排除弁 32b は、後述する吸引キャップ 40 により、インクジェットヘッド 22 内の吐出物を吸引する場合に用いられる。

【0027】

インクジェットヘッド 22 は、ヘッド体 24 及び吐出物を吐出する多数のノズルが形成されているノズル形成面 26 を備え、ノズル形成面 26 のノズルから吐出物、例えば、反応ガスを供するためのガス流路を基板上に形成する際に基板に塗布されるレジスト溶液等が吐出される。

テーブル 28 は、所定の方向に移動可能に設置されている。テーブル 28 は、図中矢印で示す方向に移動することにより、ベルトコンベア BC1 により搬送される基板を載置して、吐出装置 20a 内に取り込む。

【0028】

吸引キャップ 40 は、図 2 に示す矢印方向に移動可能となっており、ノズル形成面 26 に形成された複数のノズルを囲むようにノズル形成面 26 に密着し、ノズル形成面 26 との間に密閉空間を形成してノズルを外気から遮断できる構成となっている。即ち、吸引キャップ 40 によりインクジェットヘッド 22 内の吐出物を吸引するときは、このヘッド部気泡排除弁 32b を閉状態にして、タンク 30 側から吐出物が流入しない状態とし、吸引キャップ 40 で吸引することにより、吸引される吐出物の流速を上昇させ、インクジェットヘッド 22 内の気泡を速やかに排出することができる。

【0029】

吸引キャップ 40 の下方には流路が設けられており、この流路には、吸引バルブ 42 が配置されている。吸引バルブ 42 は、吸引バルブ 42 の下方の吸引側と、上方のインクジェットヘッド 22 側との圧力バランス（大気圧）を取るための時間を短縮する目的で流路を閉状態にする役割を果たす。この流路には、吸引異常を検出する吸引圧検出センサ 44 やチューブポンプ等からなる吸引ポンプ 46 が配置されている。また、吸引ポンプ 46 で吸引、搬送された吐出物 34 は、廃液

タンク 48 内に一時的に収容される。

【0030】

本実施形態においては、吐出装置 20b～20m は、吐出物 34 の種類が異なることを除き、吐出装置 20a と同様の構成のものである。したがって、以下においては、各吐出装置の同一構成については同一の符号を用いる。

【0031】

次に、図 1 に示す燃料電池製造ラインを用いて、燃料電池を製造する各工程を説明する。図 1 に示す燃料電池製造ラインを用いる燃料電池の製造方法のフローチャートを図 3 に示す。

【0032】

図 3 に示すように、本実施形態に係る燃料電池は、第 1 の基板にガス流路を形成する工程 (S10, 第 1 のガス流路形成工程)、ガス流路内に第 1 の支持部材を塗布する工程 (S11, 第 1 の支持部材塗布工程)、第 1 の集電層を形成する工程 (S12, 第 1 の集電層形成工程)、第 1 のガス拡散層を形成する工程 (S13, 第 1 のガス拡散層形成工程)、第 1 の反応層形成工程 (S14, 第 1 の反応層形成工程)、電解質膜を形成する工程 (S15, 電解質膜形成工程)、第 2 の反応層を形成する工程 (S16, 第 2 の反応層形成工程)、第 2 のガス拡散層を形成する工程 (S17, 第 2 のガス拡散層形成工程)、第 2 の集電層を形成する工程 (S18, 第 2 の集電層形成工程)、第 2 の支持部材を第 2 のガス流路内に塗布する工程 (S19, 第 2 の支持部材塗布工程)、及び第 2 のガス流路が形成された第 2 の基板を積層する工程 (S20, 組立工程) により製造される。

【0033】

(1) 第 1 のガス流路形成工程 (S10)

まず、図 4 (a) に示すように、矩形状の第 1 の基板 2 を用意し、基板 2 をベルトコンベア BC1 により吐出装置 20a まで搬送する。基板 2 としては特に制限されず、シリコン基板等の通常の燃料電池に用いられるものを使用できる。本実施形態では、シリコン基板を用いている。

【0034】

ベルトコンベア BC1 により搬送された基板 2 は、吐出装置 20a のテーブル

28上に載置され、吐出装置20a内に取り込まれる。吐出装置20a内においては、吐出装置20aのタンク30内に収容されているレジスト液が、ノズル形成面26のノズルを介してテーブル28に搭載された基板2上の所定位置に塗布され、基板2の表面にレジストパターン（図中、斜線部分）が形成される。レジストパターンは、図4（b）に示すように、基板2表面の第1の反応ガスを供給するための第1のガス流路を形成する部分以外の部分に形成される。

【0035】

所定の位置にレジストパターンが形成された基板2は、ベルトコンベアBC1により吐出装置20bに搬送され、吐出装置20bのテーブル28上に載置され、吐出装置20b内に取り込まれる。吐出装置20b内においては、タンク30内に収容されているフッ化水素酸水溶液等のエッチング液が、ノズル形成面26のノズルを介して基板2表面に塗布される。エッチング液により、レジストパターンが形成されている部分以外の基板2表面部がエッチングされて、図5（a）に示すように、基板2の一方の側面から他方の側面に延びる断面コ字形状の第1のガス流路が形成される。また、図5（b）に示すように、ガス流路が形成された基板2は、図示しない洗浄装置によって表面が洗浄され、レジストパターンが除去される。次いで、ガス流路が形成された基板2は、テーブル28からベルトコンベアBC1へ移され、ベルトコンベアBC1により吐出装置20cまで搬送される。

【0036】

（2）第1の支持部材塗布工程（S11）

次に、第1のガス流路が形成された基板2上に、第1の集電層を支持するための第1の支持部材をガス流路内に塗布する。第1の支持部材の塗布は、基板2をテーブル28に載置して吐出装置20c内に取り込み、次いで、吐出装置20cにより、タンク30内に収容されている第1の支持部材4をノズル形成面26のノズルを介して、基板2に形成されている第1のガス流路内に吐出することにより行われる。

【0037】

用いる第1の支持部材としては、第1の反応ガスに対して不活性であり、第1

の集電層が第1のガス流路に落下するのを防止し、かつ、第1の反応層へ第1の反応ガスが拡散するのを妨げないものであれば特に制限されない。例えば、炭素粒子、ガラス粒子等が挙げられる。本実施形態では、直径1～5ミクロン程度の粒子径の多孔質カーボンを使用している。所定の粒径をもつ多孔質カーボンを支持部材として使用することにより、ガス流路を介して供給される反応ガスが多孔質カーボンの隙間から上へ拡散するため、反応ガスの流れが妨げられることがなくなる。

【0038】

第1の支持部材4が塗布された基板2の端面図を図6に示す。第1の支持部材4が塗布された基板2は、テーブル28からベルトコンベアBC1へ移され、ベルトコンベアBC1により吐出装置20dまで搬送される。

【0039】

(3) 第1の集電層形成工程(S12)

次に、基板2上に、第1の反応ガスが反応することにより発生した電子を集めるための第1の集電層を形成する。まず、ベルトコンベアBC1により吐出装置20dまで搬送された基板2を、テーブル28上に載置して吐出装置20d内に取り込む。吐出装置20dにおいては、タンク30内に収容されている集電層形成用材料の一定量を、ノズルの形成面26のノズルを介して基板2上に吐出することにより、所定のパターンを有する第1の集電層が形成される。

【0040】

用いる集電層形成用材料としては、導電性物質を含む材料であれば特に制限されない。導電性物質としては、例えば、銅、銀、金、白金、アルミニウム等が挙げられる。これらは1種単独で、あるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。集電層形成用材料は、これらの導電性物質の少なくとも1種を適当な溶媒に分散させ、所望により分散剤を添加して調製することができる。

【0041】

本実施形態では、集電層形成用材料の塗布を吐出装置20dを用いて行っているので、簡便な操作により、所定量を所定の位置に正確に塗布することができる。したがって、集電層形成用材料の使用量を大幅に節約でき、所望のパターン（

形状)の集電層を効率よく形成することができ、集電層形成用材料の塗布間隔を場所により変化させることにより、反応ガスの通気性を制御することも容易にでき、用いる集電層形成用材料の種類を塗布位置により変更することも自由に行うことができる。

【0042】

第1の集電層6が形成された基板2の端面図を図7に示す。図7に示すように、第1の集電層6は、基板2に形成されている第1のガス流路内の第1の支持部材4により支持され、第1のガス流路内に落下しないようになっている。第1の集電層6が形成された基板2は、テーブル28からベルトコンベアBC1へ移され、ベルトコンベアBC1により吐出装置20eまで搬送される。

【0043】

(4) 第1のガス拡散層形成工程(S13)

次に、基板2の集電層上に第1のガス拡散層を形成する。まず、ベルトコンベアBC1により吐出装置20eまで搬送された基板2をテーブル28上に載置して、吐出装置20e内に取り込む。吐出装置20e内においては、吐出装置20eのタンク30内に収容されているガス拡散層形成用材料を、ノズル形成面26のノズルを介してテーブル28に載置されている基板2表面の所定位置に吐出して、第1のガス拡散層が形成される。

【0044】

用いるガス拡散層形成用材料としては、炭素微粒子が一般的であるが、カーボンナノチューブ、カーボンナノフーン、フラーレン等も使用できる。本実施形態では、ガス拡散層を塗布装置20eを用いて形成するため、例えば、集電層側には塗布間隔を大きく(数十 μm)し、表面側には塗布間隔を小さく(数十 nm)することで、基板付近は流路幅を大きくして反応ガスの拡散抵抗をできるだけ小さくしつつ、反応層付近(ガス拡散層の表面側)においては、均一で細かい流路となっているガス拡散層を容易に形成できる。また、ガス拡散層の基板側は炭素微粒子を用い、表面側は、ガス拡散能力は低い触媒担持能力に優れる材料を用いることもできる。

【0045】

第 1 のガス拡散層 8 が形成された基板 2 の端面図を図 8 に示す。図 8 に示すように、第 1 のガス拡散層 8 は、基板 2 に形成されている第 1 の集電層を覆うように基板 2 の全面に形成されている。第 1 のガス拡散層 8 が形成された基板 2 は、テーブル 2 8 からベルトコンベア B C 1 へ移され、ベルトコンベア B C 1 により吐出装置 2 0 f まで搬送される。

【 0 0 4 6 】

(5) 第 1 の反応層形成工程 (S 1 4)

次に、基板 2 上に第 1 の反応層を形成する。第 1 の反応層は、第 1 の集電層とガス拡散層 8 を介して電氣的に接続されるように形成する。

まず、ベルトコンベア B C 1 により吐出装置 2 0 f まで搬送された基板 2 をテーブル 2 8 上に載置して、吐出装置 2 0 f 内に取り込む。次に、吐出装置 2 0 f のタンク 3 0 内に收容されている反応層形成用材料の所定量が、基板 2 表面上の第 1 の反応層形成部位に所定間隔で吐出され、反応層形成材料の塗膜が形成される。次いで、得られた塗膜から不要分を除去することにより反応層が形成される。

【 0 0 4 7 】

吐出装置 2 0 f を用いて反応層形成用材料の所定量を、第 1 の集電層 8 表面上の第 1 の反応層形成部位に所定間隔で吐出して、反応層形成材料の塗膜を形成する工程の概念図を図 9 に示す。すなわち、図 9 (a) に示すように基板上の第 1 の反応層を形成する部分全体に、反応層形成用材料を等間隔に (すなわち、その前に塗布した反応層形成用材料の液滴と重ならないように) 塗布する。次いで、図 9 (b) に示すように、その間隙にさらに等間隔に塗布を行なう。さらに、図 9 (c) に示すようにその間隙に塗布を行う。この操作を繰り返すことにより、全体に均一な塗布を行なうことができ、均一に所望量の触媒金属を有する反応層を形成することができる。なお、図 9 (a) ~ (c) において、まる付き数字は塗布順序、1 0 a は反応層形成用材料の塗膜をそれぞれ示す。

【 0 0 4 8 】

この方法は、お茶の葉を急須に入れてお湯を注ぎ、複数の湯飲みにお茶を入れる場合に、急須から複数の湯飲み少量ずつお茶を注ぐことを繰り返すと、全体

に均一な濃さのお茶を点てることのできるのと類似したものである。すなわち、吐出装置から一回で吐出される反応層形成用材料の量や濃度には誤差があるので、一定間隔をおいて反応層形成用材料の塗布を繰り返した方が、一方の側から他方向へ順番に塗布する場合よりも、全体としては均一な塗布が可能であり、均一で所望量の触媒金属を有する反応層を得ることができる。

【0049】

反応層形成材料の液滴の大きさ及び塗布間隔は液滴が着弾時に互いに接触しない大きさ及び間隔であれば特に制限されないが、所望量の触媒金属を有する反応層を効率よく形成する上観点から、液滴の大きさを小さくし（例えば、10ピコリットル以下）、塗布間隔を十分にあげる（例えば、0.1～1mm程度）のが好ましい。

【0050】

反応層形成用材料としては、例えば、(a) 金属化合物（金属錯体、金属塩）又は金属水酸化物をカーボン担体に吸着させた金属担持カーボンの分散液や、(b) 金属微粒子をカーボン担体に吸着させた分散液等が挙げられる。

【0051】

(a) の分散液は、次のようにして調製することができる。まず、金属化合物の水溶液又は水／アルコール混合溶媒溶液に所望によりアルカリを添加して金属水酸化物とし、そこへ、カーボンブラック等のカーボン担体を添加し、加熱攪拌することにより、金属化合物又は金属水酸化物をカーボン担体に吸着（沈析）させて、金属担持カーボンの粗生物を得る。次いで、このものを濾過、洗浄、乾燥を適宜繰り返すことにより精製した後、水又は水／アルコール混合溶媒に分散して分散液を得ることができる。また、(b) の分散液は、金属微粒子を有機分散剤に分散させた後、カーボン担体を添加して調製することができる。用いる有機分散剤としては、分散液中に金属微粒子を均一に分散させることができるものであれば特に制限されない。例えば、アルコール類、ケトン類、エステル類、エーテル類、炭化水素類、芳香族炭化水素類等が挙げられる。

【0052】

前記 (a) 及び (b) の分散液に用いる金属化合物、金属水酸化物、金属微粒

子の金属としては、例えば、白金、ロジウム、ルテニウム、イリジウム、パラジウム、オスミウム及びこれらの2種以上からなる合金からなる群から選ばれる1種若しくは2種以上の金属の微粒子が挙げられ、白金が特に好ましい。

【0053】

吐出装置20fにより、反応層形成用材料を塗布して反応層形成用材料の塗膜を形成した後は、得られた塗膜から不要分を除去することにより、単粗粒子に金属微粒子が担持された構造の第1の反応層10を得ることができる。

【0054】

不反応層形成用材料の塗膜から不要分を除去する方法としては、前記塗膜を、不活性ガス雰囲気下、常圧で加熱することにより不要分を除去する方法、減圧下で加熱することにより不要分を除去する方法等が挙げられるが、後者の方法が好ましい。加熱温度は低い程好ましく、より好ましくは100℃以下、さらに好ましくは50℃以下である。また、不要分を除去する処理はなるべく短い時間で行うのが好ましい。長時間、を高温で不要分を除去する場合には、吐出装置により作製した金属微粒子（又は金属化合物の微粒子）の均一な分散状態が破壊され、触媒金属が均一に分散した反応層を得ることができなくなるおそれがある。

【0055】

本発明においては、第1の反応層形成部位全体に、反応層形成用材料の所定量を所定間隔をおいて塗布し、塗布された反応層形成用材料の液滴から不要物を除去することを1単位操作とし、該単位操作を繰り返すことにより第1の反応層を形成するのがより好ましい。また、吐出装置20fとして複数の吐出ノズルを有するものを用い、前記1単位操作毎に異なる吐出ノズルから反応層形成材料を吐出させるのが好ましい。単位面積あたりに塗布される触媒金属の量が均一となり、より均一に分散された触媒金属を有する反応層を形成することができるからである。

【0056】

以上のようにして、第1の反応層10が形成された基板2の端面図を図10に示す。第1の反応層10が形成された基板2は、テーブル28からベルトコンベアBC1へ移され、ベルトコンベアBC1により吐出装置20gまで搬送される

。

【0057】

(6) 電解質膜形成工程 (S15)

次に、第1の反応層10が形成された基板2上に電解質膜を形成する。まず、ベルトコンベアBC1により吐出装置20gまで搬送された基板2を、テーブル28上に載置して吐出装置20g内に取り込む。吐出装置20gにおいては、タンク30内に収容されている電解質膜の形成材料をノズル形成面26のノズルを介して第1の反応層10上に吐出して電解質膜12が形成される。

【0058】

用いる電解質膜の形成材料としては、例えば、ナフィオン（デュポン社製）等のパーフルオロスルホン酸を、水とメタノールの重量比が1：1の混合溶液中でミセル化して得られる高分子電解質材料や、タングスト磷酸、モリブド磷酸等のセラミックス系固体電解質を所定の粘度（例えば、20cP以下）に調整した材料や等が挙げられる。

【0059】

電解質膜が形成された基板2の端面図を図11に示す。図11に示すように、第1の反応層10上に所定の厚さを有する電解質膜12が形成されている。電解質膜12が形成された基板2は、テーブル28からベルトコンベアBC1へ移され、ベルトコンベアBC1により吐出装置20hまで搬送される。

【0060】

(7) 第2の反応層形成工程 (S16)

次に、電解質膜12が形成された基板2上に第2の反応層を形成する。第2の反応層は、ガス流路及びガス拡散層が形成された基板上に、不活性ガスを前記ガス流路中を流しながら、反応層形成用材料を塗布して形成する。

【0061】

まず、ベルトコンベアBC1により吐出装置20hまで搬送された基板2を、テーブル28上に載置して吐出装置20h内に取り込む。吐出装置20hにおいては、吐出装置20fにおいて行われた処理と同様の処理により、第2の反応層10'が形成される。第2の反応層10'を形成する材料としては、第1の反応

層と同様のものを使用することができる。

【0062】

電解質膜 12 上に第 2 の反応層 10' が形成された基板 2 の端面図を図 12 に示す。図 12 に示すように、電解質膜 12 上に第 2 の反応層 10' が形成されている。第 2 の反応層 10' においては、第 2 の反応ガスの反応が行われる。第 2 の反応層 10' が形成された基板 2 は、テーブル 28 からベルトコンベア BC1 へ移され、ベルトコンベア BC1 により吐出装置 20 i まで搬送される。

【0063】

(8) 第 2 のガス拡散層形成工程 (S17)

次に、第 2 の反応層 10' が形成された基板 2 上に第 2 のガス拡散層を形成する。まず、ベルトコンベア BC1 により吐出装置 20 i まで搬送された基板 2 を、テーブル 28 上に載置して吐出装置 20 i 内に取り込む。吐出装置 20 i においては、吐出装置 20 e において行われた処理と同様の処理により、第 2 のガス拡散層 8' が形成される。第 2 のガス拡散層形成用材料としては、第 1 のガス拡散層 8 と同様のものを使用できる。

【0064】

第 2 のガス拡散層 8' が形成された基板 2 の端面図を図 13 に示す。第 2 のガス拡散層 8' が形成された基板 2 は、テーブル 28 からベルトコンベア BC1 へ移され、ベルトコンベア BC1 により吐出装置 20 j まで搬送される。

【0065】

(9) 第 2 の集電層形成工程 (S18)

次に、第 2 のガス拡散層 8' が形成された基板 2 上に第 2 の集電層を形成する。まず、ベルトコンベア BC1 により吐出装置 20 j まで搬送された基板 2 を、テーブル 28 上に載置して吐出装置 20 j 内に取り込み、吐出装置 20 d において行われた処理と同様の処理により、第 2 の集電層 6' が第 2 のガス拡散層 8' 上に形成される。第 2 の集電層形成用材料としては、第 1 の集電層形成用材料と同様のものを使用できる。第 2 の集電層 6' が形成された基板 2 は、テーブル 28 からベルトコンベア BC1 へ移され、ベルトコンベア BC1 により吐出装置 20 k まで搬送される。

【0066】

(8) 第2の支持部材塗布工程 (S19)

次に、ベルトコンベアBC1により吐出装置20kまで搬送された基板2を、テーブル28上に載置して吐出装置20k内に取り込み、吐出装置20cにおいて行われた処理と同様処理により、第2の支持部材が塗布される。第2の支持部材としては、第1の支持部材と同様のものが使用できる。

【0067】

第2の集電層6'及び第2の支持部材4'が塗布された基板2の端面図を図14に示す。第2の支持部材4'は、第2の集電層8'上に形成され、基板2上に積層する第2の基板に形成されている第2のガス流路内に收容される位置に塗布されている。

【0068】

(9) 第2の基板組立工程 (S20)

次に、第2の支持部材4'が塗布された基板2と、別途用意した第2のガス流路が形成された第2の基板とを積層する。基板2(第1の基板)と第2の基板との積層は、基板2上に形成された第2の支持部材4'が、第2の基板に形成された第2のガス流路内に收容されるように接合することにより行われる。ここで、第2の基板としては、第1の基板と同じものを使用できる。また、第2のガス流路形成は、吐出装置20l及び20mにおいて、吐出装置20a及び20bにより行なわれる処理と同様の処理により行なわれる。

【0069】

以上のようにして、図15に示す構造の燃料電池を製造することができる。図15に示す燃料電池は、図中、下側から、第1の基板2と、第1の基板2に形成された第1のガス流路3と、第1のガス流路3内に收容された第1の支持部材4と、第1の基板2及び第1の支持部材4上に形成された第1の集電層6と、第1のガス拡散層8と、第1のガス拡散層8上に形成された第1の反応層10と、電解質膜12と、第2の反応層10'と、第2のガス拡散層8'と、第2の集電層6'と、第2のガス流路3'と、第2のガス流路3'内に收容された第2の支持部材4'と、第2の基板2'とから構成されている。また、図15に示す燃料電

池においては、基板 2 に形成されている一方の側面から他方の側面へと延びるコ字状の第 1 のガス流路と基板 2' に形成されている第 2 のガス流路とが平行になるように基板 2' が配置されている。

【0070】

本実施形態により製造される燃料電池の種類は特に制約されない。例えば、高分子電解質型燃料電池、リン酸型燃料電池、ダイレクトメタノールタイプの燃料電池等が挙げられる。

【0071】

本実施形態により製造される燃料電池は、次のように動作する。すなわち、第 1 の基板 2 の第 1 のガス流路 3 から第 1 の反応ガスが導入され、ガス拡散層 8 により均一に拡散され、拡散された第 1 の反応ガスが第 1 の反応層 10 で反応してイオンと電子が生じ、生じた電子は集電層 8 で集められ、第 2 の基板 2' の第 2 の集電層 6' に流れ、第 1 の反応ガスにより生じたイオンは電解質膜 12 の中を第 2 の反応層 8' へ移動する。一方、第 2 の基板 2' のガス流路 3' から第 2 の反応ガスが導入され、第 2 のガス拡散層 8' により均一に拡散され、拡散された第 2 の反応ガスが第 2 の反応層 10' において、電解質膜 12 中を移動してきたイオン及び第 2 の集電層 6' から送り込まれた電子と反応する。例えば、第 1 の反応ガスが水素ガスであり、第 2 の反応ガスが酸素ガスである場合には、第 1 の反応層 10 においては、 $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$ の反応が進行し、第 2 の反応層 10' においては、 $1/2 O_2 + 2H^+ + 2e^- \rightarrow H_2O$ の反応が進行する。

【0072】

上述した実施形態に係る燃料電池の製造方法においては、全ての工程において吐出装置を用いているが、燃料電池を製造する何れかの工程において吐出装置を用いて燃料電池を製造することもできる。例えば、吐出装置を用いて集電層形成用材料を塗布して、第 1 の集電層及び／又は第 2 の集電層を形成し、その他の工程においては従来と同様の工程により燃料電池を製造するようにしてもよい。この場合であっても、MEMS (Micro Electro Mechanical System) を用いることなく集電層を形成できるため、燃料電池の製造コストを低く抑えることができる。

【0073】

上述の実施形態の製造方法においては、基板上にレジストパターンを形成し、フッ化水素酸水溶液を塗布してエッチングを行うことによりガス流路を形成しているが、レジストパターンを形成することなくガス流路を形成することもできる。また、フッ素ガス雰囲気中に基板を載置し、基板上の所定の位置に水を吐出することによりガス流路を形成するようにしてもよい。また、基板上にガス流路形成用材料を吐出装置を用いて塗布してガス流路を形成してもよい。

【0074】

上述の実施形態の製造方法においては、第1の反応ガスが供給される第1の基板側から燃料電池の構成部分を形成し、最後に第2の基板を積層することで燃料電池の製造を行っているが、第2の反応ガスが供給される側の基板から燃料電池の製造を開始するようにしてもよい。

【0075】

上述の実施形態の製造方法においては、第2の支持部材を第1の基板に形成されている第1のガス流路に沿って塗布しているが、第1のガス流路と交差するような方向に塗布してもよい。即ち、第2の支持部材を、例えば、第1の基板に形成されているガス流路と直角に交差するように、例えば、図5（b）において図中右側面から左側面へと延びる方向に塗布するようにしてもよい。この場合には、第2の基板に形成されている第2のガス流路と、第1の基板に形成されている第1のガス流路とが、直角に交差するように第2の基板が配置された構造の燃料電池が得られる。

【0076】

上述の実施形態の製造方法においては、第1のガス流路が形成された第1の基板上に、第1の集電層、第1の反応層、電解質膜、第2の反応層及び第2の集電層を順次形成しているが、第1の基板と第2の基板のそれぞれに集電層、反応層及び電解質膜を形成し、最後に第1の基板と第2の基板とを接合することにより、燃料電池を製造することもできる。

【0077】

本実施形態の燃料電池製造ラインにおいては、第1の基板に処理を施す第1製

造ラインと第2の基板に処理を施す第2製造ラインとを設け、それぞれの製造ラインにおける処理を平行して行う製造ラインを用いるため、この第1の基板への処理と第2の基板への処理を平行して行うことができるため、迅速に燃料電池を製造することができる。

【0078】

本発明の電子機器は、上述した燃料電池を電力供給源として備えることを特徴とする。電子機器としては、携帯電話機、PHS、モバイル、ノート型パソコン、PDA（携帯情報端末）、携帯テレビ電話機などが挙げられる。また、本発明の電子機器は、例えば、ゲーム機能、データ通信機能、録音再生機能、辞書機能などの他の機能を有していてもよい。

本発明の電子機器によれば、地球環境に適切に配慮したクリーンエネルギーを電力供給源として備えることができる。

【0079】

本発明の自動車は、上述した燃料電池を電力供給源として備えることを特徴とする。本発明に製造方法によれば、複数の燃料電池を積層することによって大型の燃料電池を製造することもできる。すなわち、図16に示すように、製造した燃料電池の基板2'の裏面に更にガス流路を形成し、ガス流路が形成された基板2'の裏面上に、上述の燃料電池の製造方法における製造工程と同様にしてガス拡散層、反応層、電解質膜などを形成して燃料電池を積層することによって大型の燃料電池を製造することができる。

本発明の自動車によれば、地球環境に適切に配慮したクリーンエネルギーを電力供給源として備えることができる。

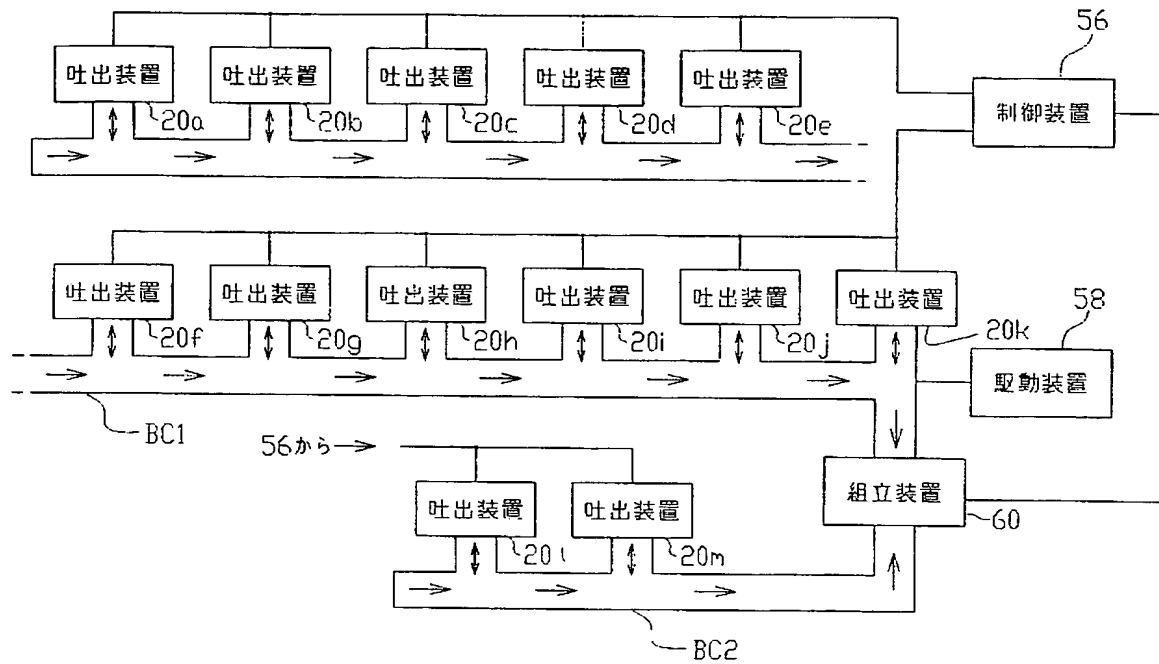
【図面の簡単な説明】

- 【図1】 実施の形態に係る燃料電池の製造ラインの一例を示す図である。
- 【図2】 実施の形態に係るインクジェット式吐出装置の概略図である。
- 【図3】 実施の形態に係る燃料電池の製造方法のフローチャートである。
- 【図4】 実施の形態に係る燃料電池の製造過程の基板の端面図である。
- 【図5】 実施の形態に係るガス流路を形成する処理を説明する図である。
- 【図6】 実施の形態に係る燃料電池の製造過程の基板の端面図である。

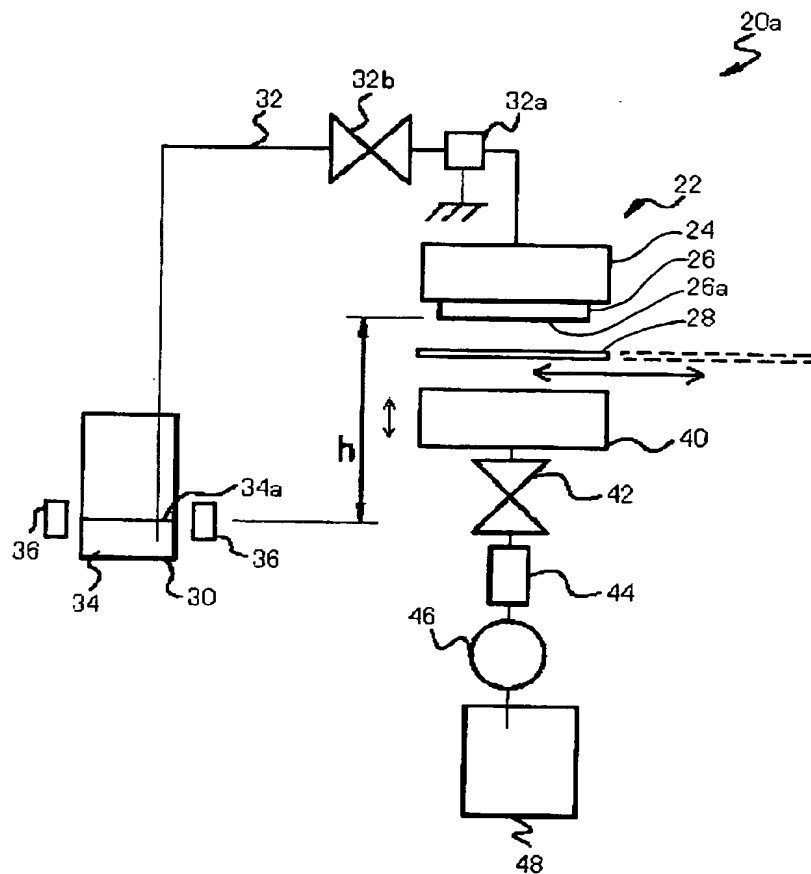
- 【図 7】 実施の形態に係る燃料電池の製造過程の基板の端面図である。
- 【図 8】 実施の形態に係る燃料電池の製造過程の基板の端面図である。
- 【図 9】 実施の形態に係る反応層を形成する処理を説明する図である。
- 【図 1 0】 実施の形態に係る燃料電池の製造過程の基板の端面図である。
- 【図 1 1】 実施の形態に係る燃料電池の製造過程の基板の端面図である。
- 【図 1 2】 実施の形態に係る燃料電池の製造過程の基板の端面図である。
- 【図 1 3】 実施の形態に係る燃料電池の製造過程の基板の端面図である。
- 【図 1 4】 実施の形態に係る燃料電池の製造過程の基板の端面図である。
- 【図 1 5】 実施の形態に係る燃料電池の端面図である。
- 【図 1 6】 実施の形態に係る燃料電池を積層した大型燃料電池の図である。
- 【符号の説明】 2…第 1 の基板、2'…第 2 の基板、3…第 1 のガス流路、3'…第 2 のガス流路、4…第 1 の支持部材、4'…第 2 の支持部材、6…第 1 の集電層、6'…第 2 の集電層、8…第 1 のガス拡散層、8'…第 2 のガス拡散層、1 0 あ…反応層形成用材料の塗膜、1 0…第 1 の反応層、1 0'…第 2 の反応層、1 2…電解質膜、2 0 a ～ 2 0 m…吐出装置、B C 1, 2…ベルトコンベア

【書類名】 図面

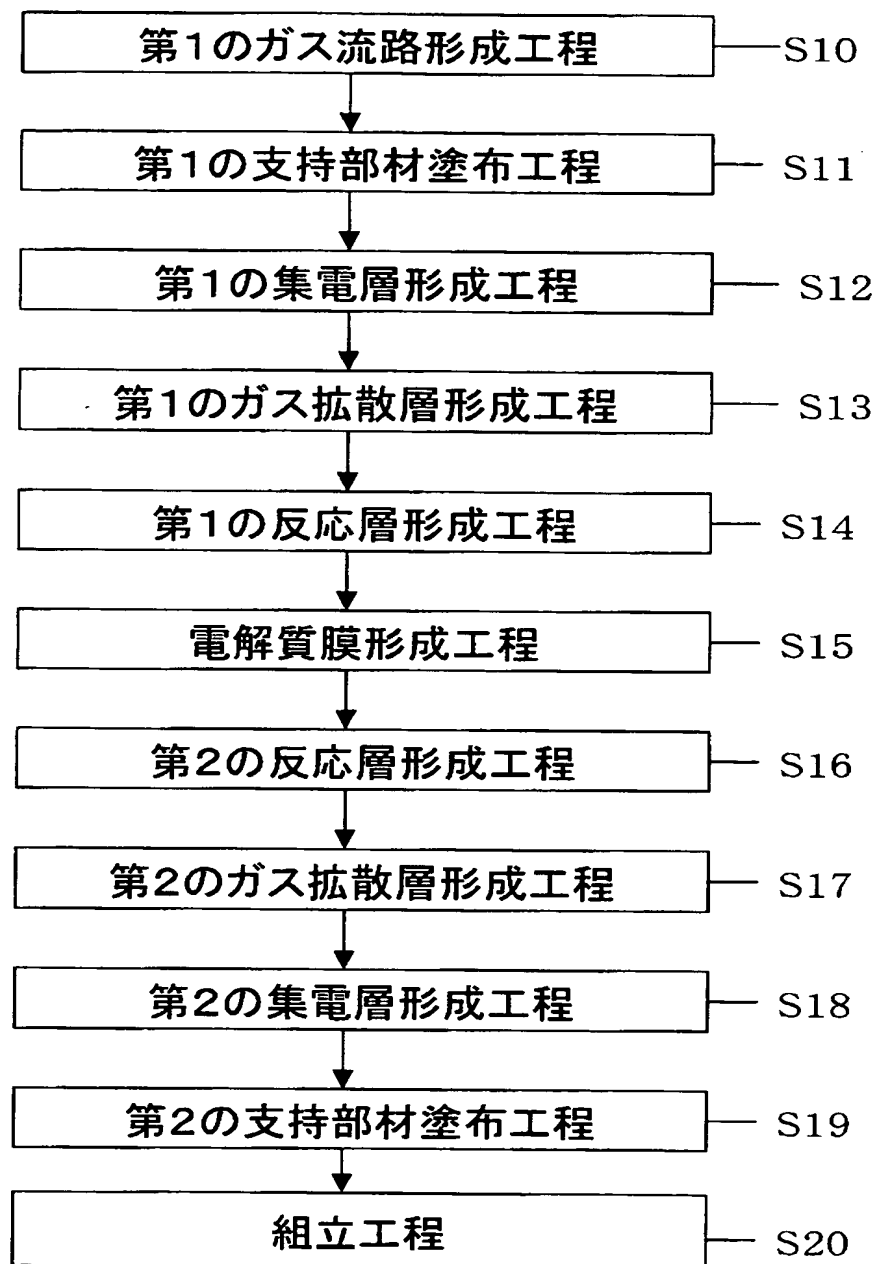
【図 1】



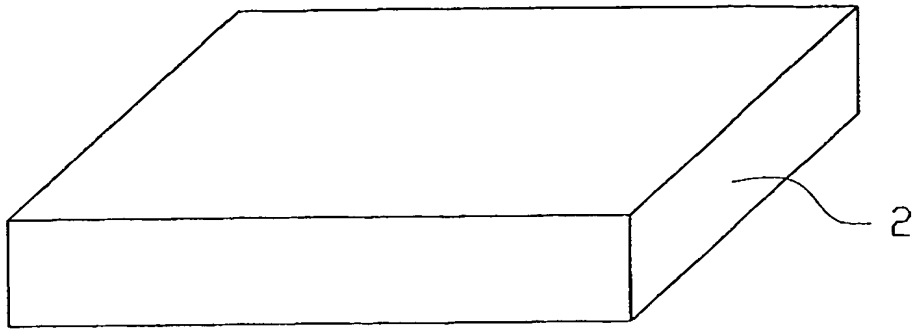
【図 2】



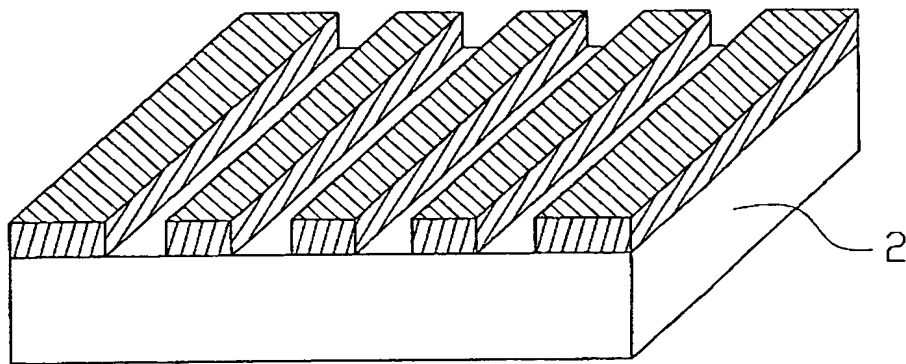
【図 3】



【図 4】

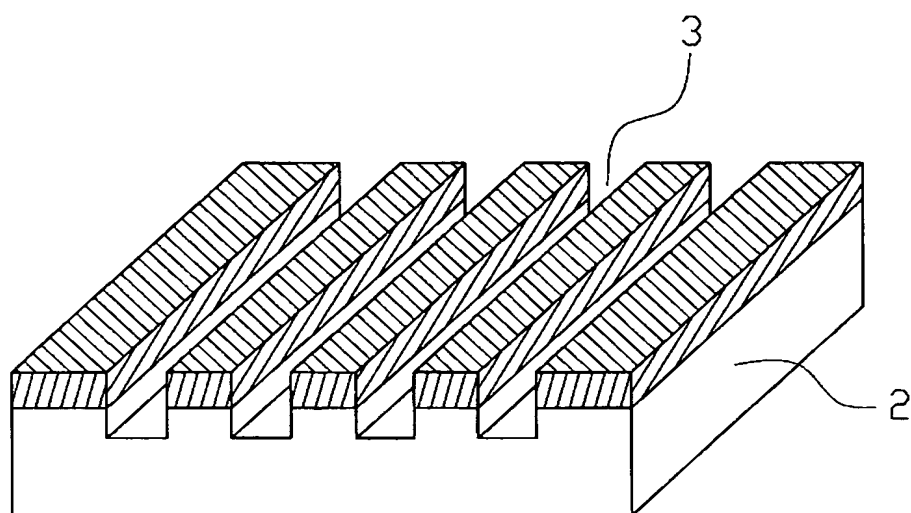


(a)

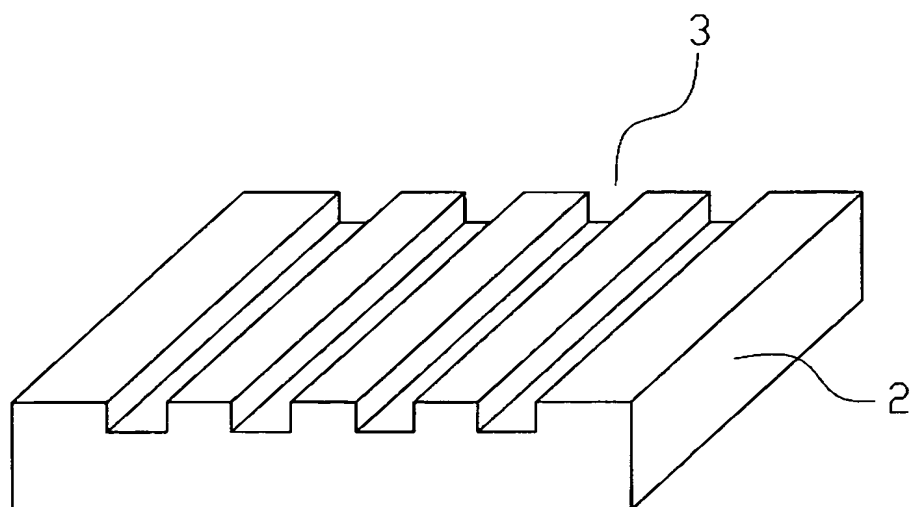


(b)

【図 5】

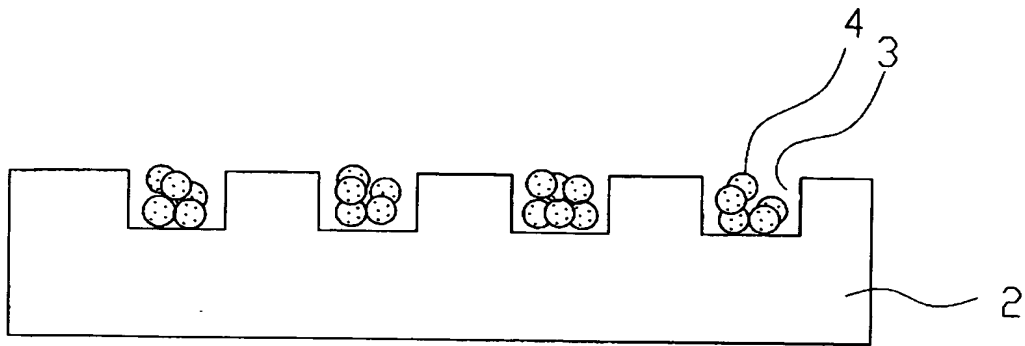


(a)

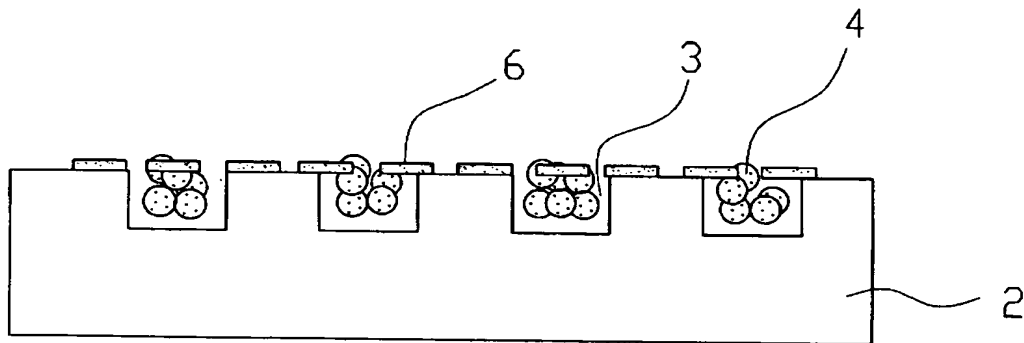


(b)

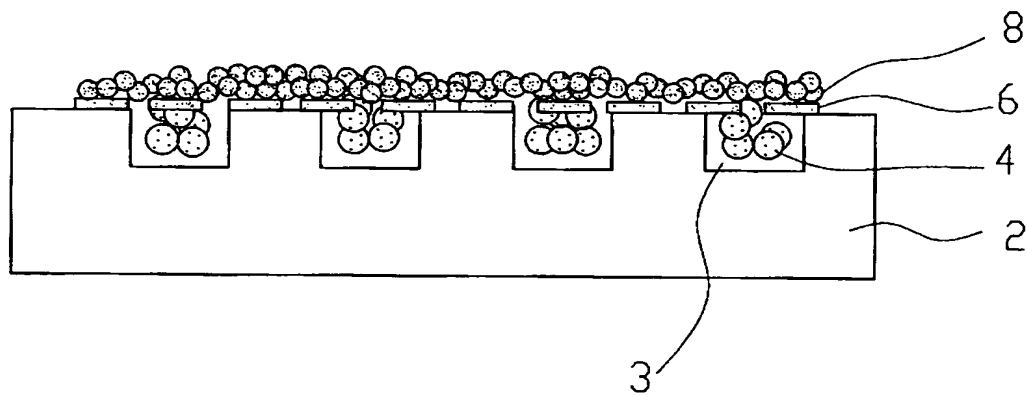
【図 6】



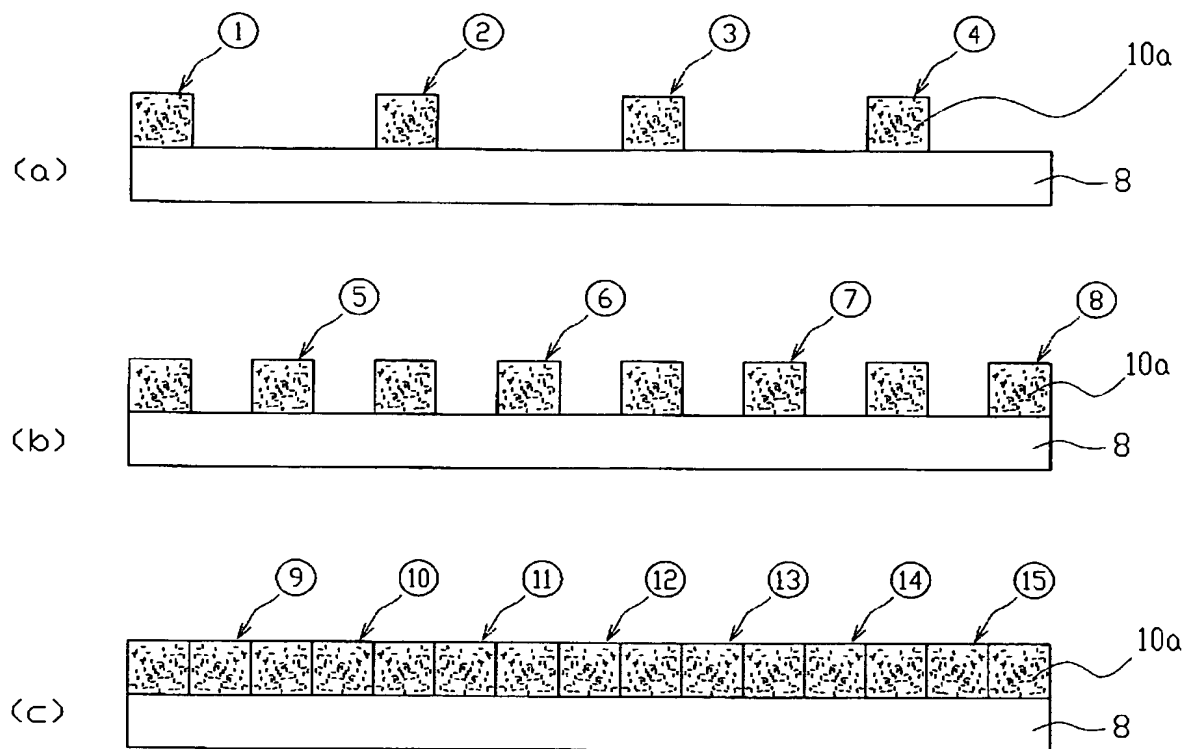
【図 7】



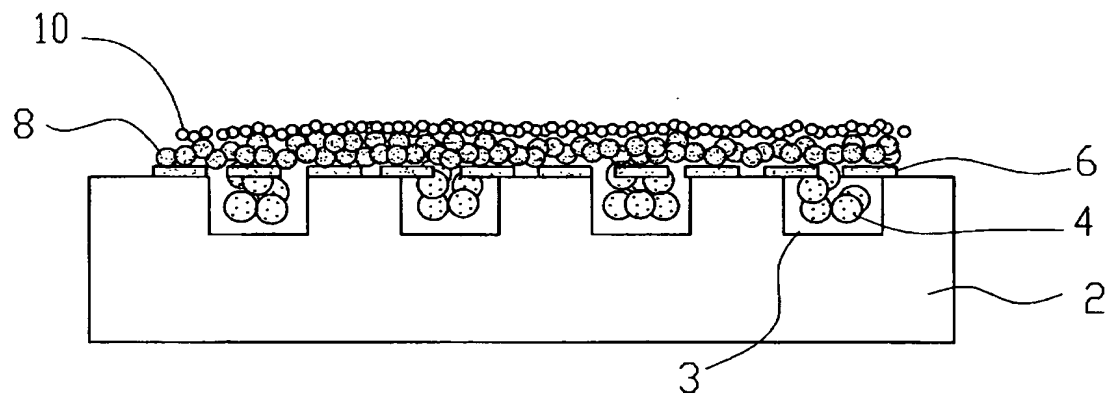
【図 8】



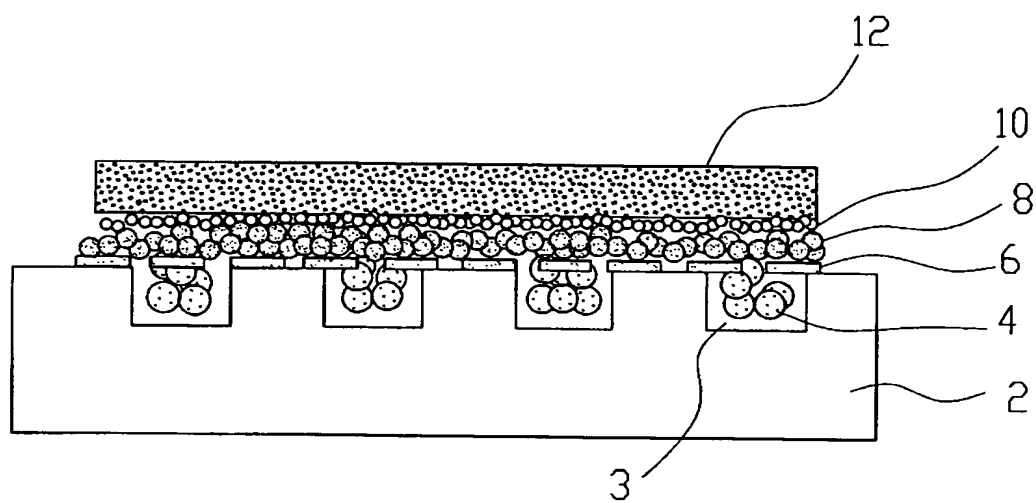
【図 9】



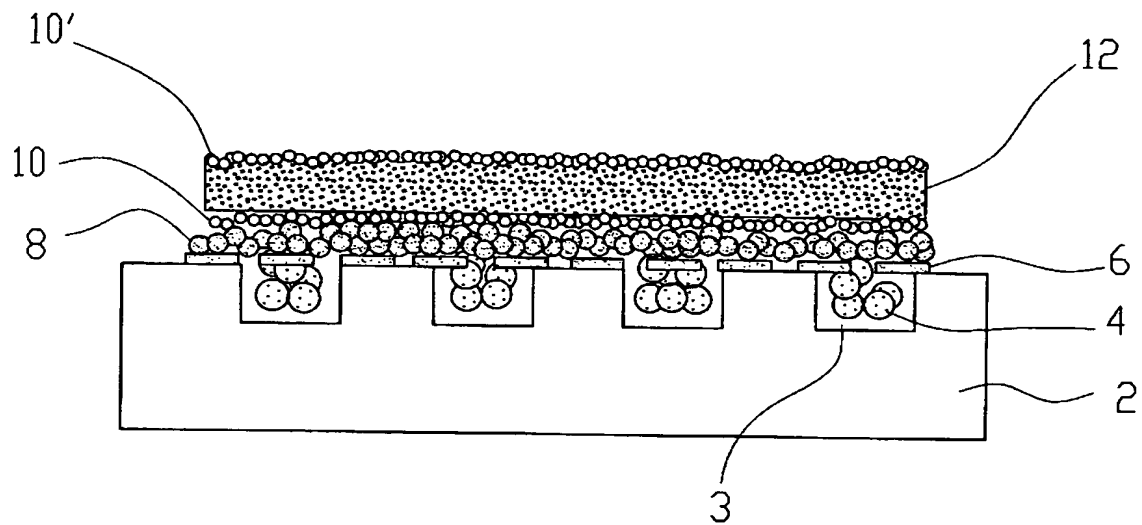
【図 10】



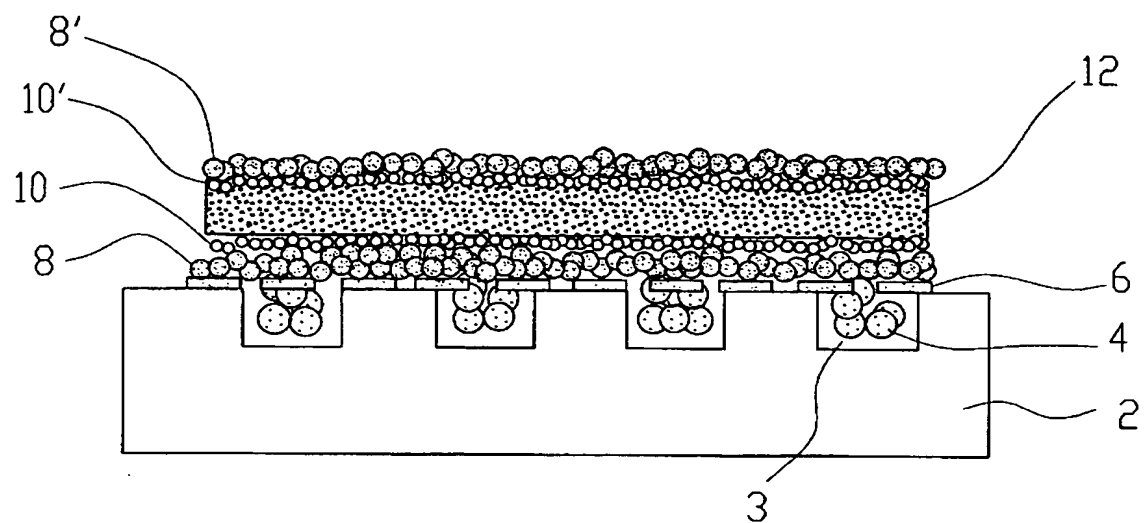
【図 1 1】



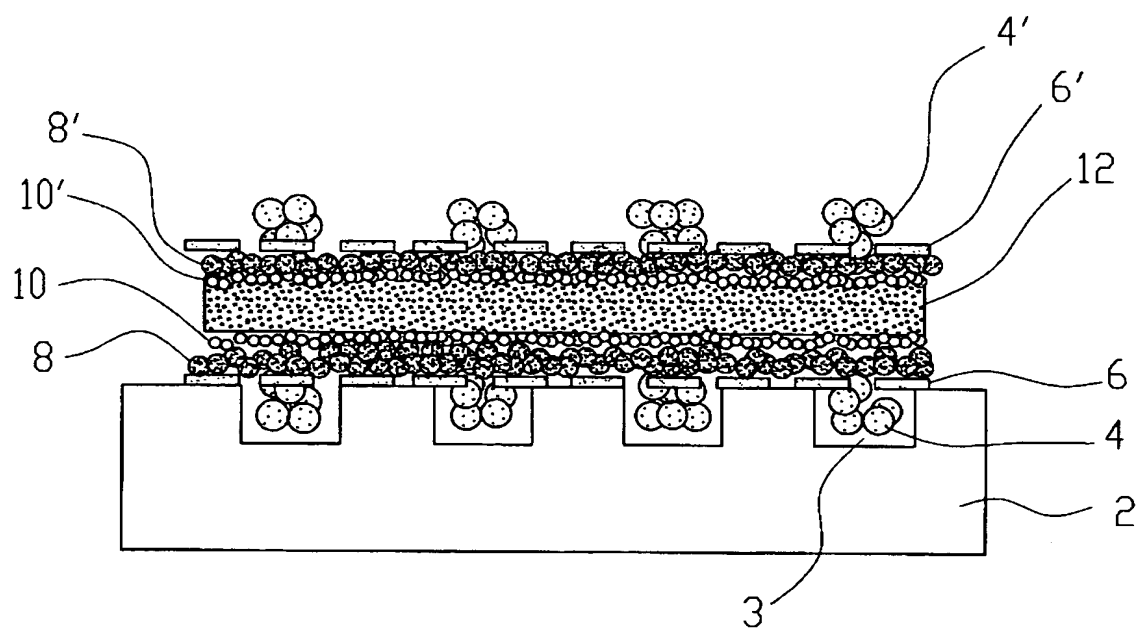
【図 1 2】



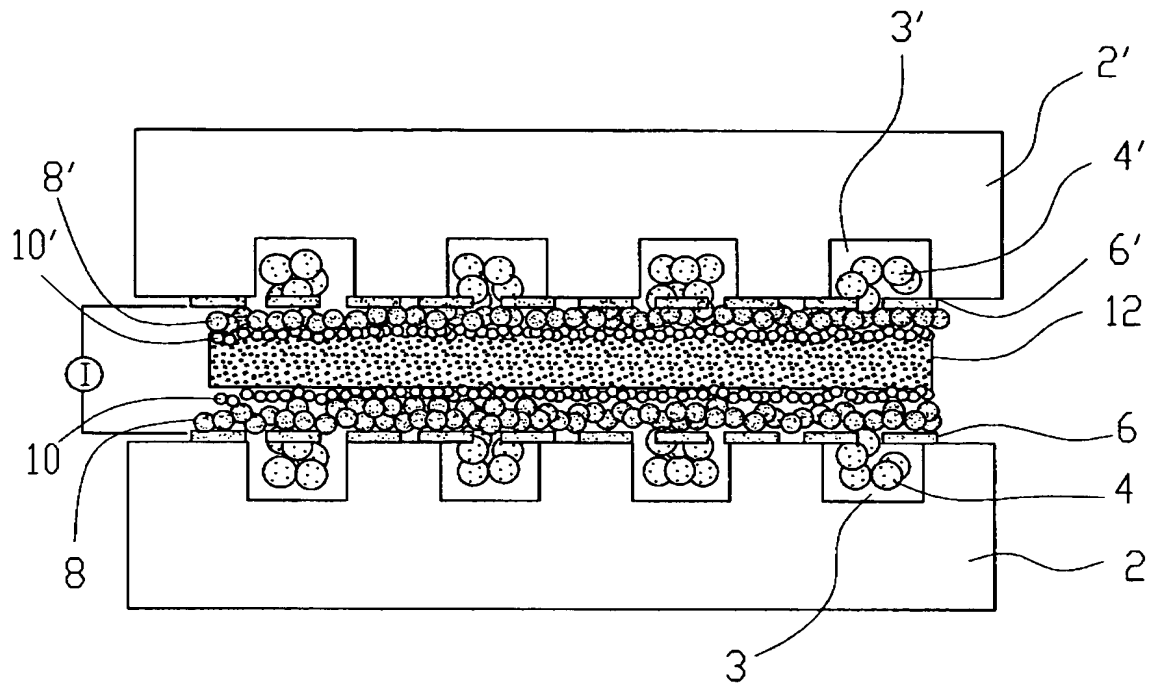
【図 13】



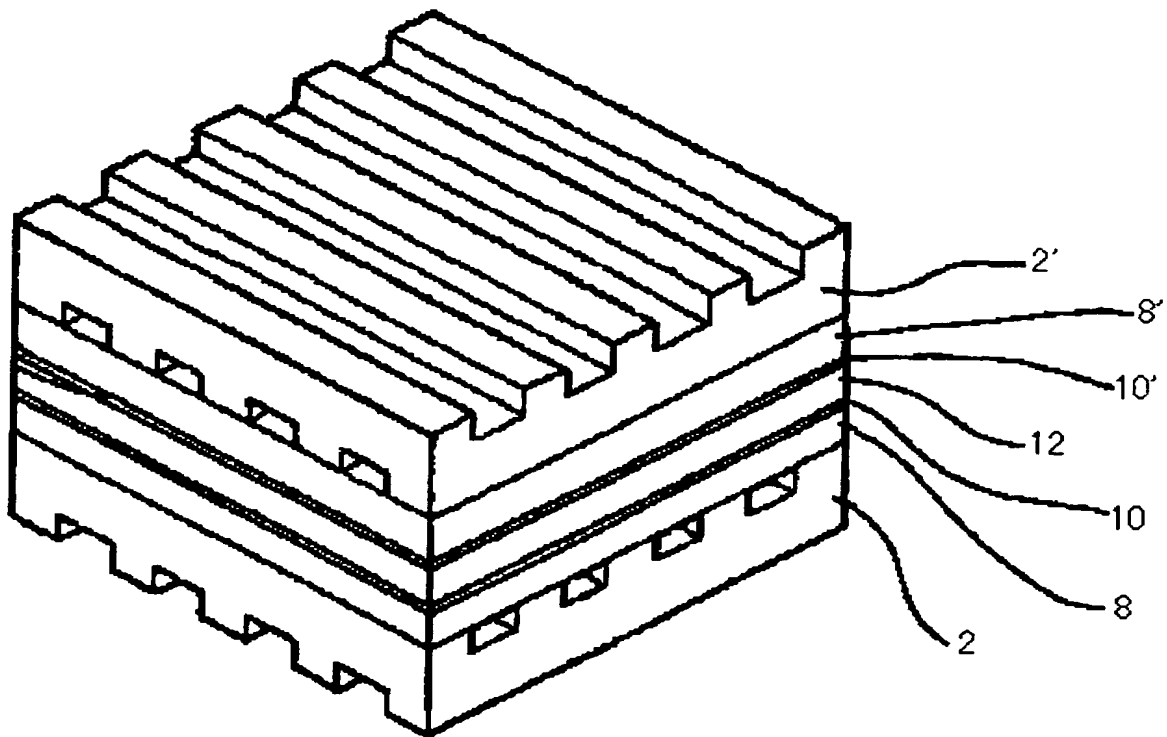
【図 14】



【図 15】



【図 16】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】

反応層で生じた電子を効率よく集める集電層及び反応効率のよい反応層を有し、出力密度が高く、特性のよい燃料電池を効率よく製造する燃料電池の製造方法、並びにこの燃料電池を電力供給源として備える電子機器及び自動車を提供する。

【解決手段】

第1の集電層、第1の反応層、電解質膜、第2の反応層、第2の集電層が形成されてなる燃料電池の製造方法であって、前記第1の集電層の上に、反応層形成用材料の所定量を所定間隔をおいて塗布することを繰り返すことにより、第1の反応層を形成する工程を有することを特徴とする燃料電池の製造方法、並びに本発明の製造方法により製造された燃料電池を電力供給源として備えることを特徴とする電子機器及び自動車。

【選択図】 図9

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 3 - 0 9 5 9 6 5
受付番号	5 0 3 0 0 5 3 3 3 2 3
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0 0 9 4
作成日	平成 1 5 年 4 月 1 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】 平成15年 3月31日

次頁無

特願 2 0 0 3 - 0 9 5 9 6 5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 2 3 6 9]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 0 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都新宿区西新宿 2 丁目 4 番 1 号

氏 名

セイコーエプソン株式会社